



Attorney Docket No.: 05823.0204
Customer Number: 22,852

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re Application of:

Tae-Ho YOON et al.

Serial No.: 09/884,906

Filed: June 21, 2001

Group Art Unit: 1762

Examiner: Not assigned

For: SURFACE MODIFIED SILICA BY PLASMA POLYMERIZATION,
PREPARATION METHOD AND APPARATUS THEREOF

CLAIM FOR PRIORITY

Assistant Commissioner for Patents
Washington, D.C. 20231

Sir:

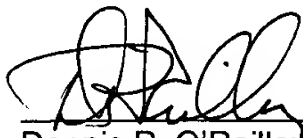
Under the provisions of 35 U.S.C. § 119, Applicants hereby claim the benefit of the filing date of Korean Patent Application No. 2001-14393, filed March 20, 2001, for the above-identified U.S. patent application.

In support of this claim for priority, enclosed is one certified copy of the priority application.

Respectfully submitted,

FINNEGAN, HENDERSON, FARABOW,
GARRETT & DUNNER, L.L.P.

By:


Dennis P. O'Reilley
Reg. No. 27,932

Date: October 15, 2001

DPO/FPD/dvz
Enclosures

LAW OFFICES

FINNEGAN, HENDERSON,
FARABOW, GARRETT,
& DUNNER, L.L.P.
1300 I STREET, N.W.
WASHINGTON, DC 20005
202-408-4000



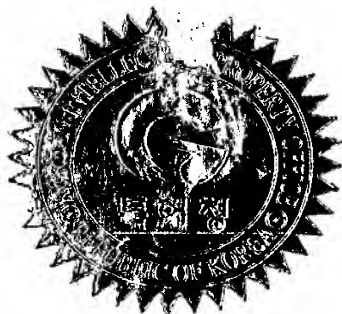
별첨 사본은 아래 출원의 원본과 동일함을 증명함.

This is to certify that the following application annexed hereto
is a true copy from the records of the Korean Intellectual
Property Office.

출원 번호 : 특허출원 2001년 제 14393 호
Application Number

출원 년 월 일 : 2001년 03월 20일
Date of Application

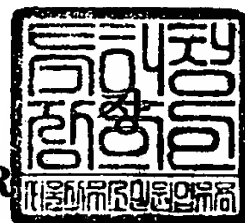
출원인 : 광주과학기술원
Applicant(s)



2001 년 04 월 10 일

특 허 청

COMMISSIONER



【서류명】	특허출원서
【권리구분】	특허
【수신처】	특허청장
【제출일자】	2001.03.20
【발명의 명칭】	표면 개질된 실리카와 그 제조방법 및 장치
【발명의 영문명칭】	Surface modified silica by plasma polymerization, preparation method of thereof and apparatus of thereof
【출원인】	
【명칭】	광주과학기술원
【출원인코드】	3-1998-099381-5
【대리인】	
【성명】	허상훈
【대리인코드】	9-1998-000602-6
【포괄위임등록번호】	2000-045865-5
【발명자】	
【성명의 국문표기】	윤태호
【성명의 영문표기】	Y00N,Tae-Ho
【주민등록번호】	570916-1055718
【우편번호】	500-712
【주소】	광주광역시 북구 오룡동 광주과학기술원 신소재공학과
【국적】	KR
【발명자】	
【성명의 국문표기】	노준호
【성명의 영문표기】	ROH,Joon Ho
【주민등록번호】	730123-1011755
【우편번호】	500-712
【주소】	광주광역시 북구 오룡동 광주과학기술원 신소재공학과
【국적】	KR
【신규성주장】	
【공개형태】	학술단체 서면발표
【공개일자】	2000.10.14
【신규성주장】	
【공개형태】	학술단체 서면발표
【공개일자】	2000.11.03

【심사청구】

청구

【취지】

특허법 제42조의 규정에 의한 출원, 특허법 제60조의 규정에 의한 출원심사를 청구합니다. 대리인
허상훈 (인)

【수수료】**【기본출원료】**

20 면 29,000 원

【가산출원료】

0 면 0 원

【우선권주장료】

0 건 0 원

【심사청구료】

5 항 269,000 원

【합계】

298,000 원

【감면사유】

정부출연연구기관

【감면후 수수료】

149,000 원

【첨부서류】

1. 요약서·명세서(도면)_1통 2. 신규성(출원시의 특례)규정을 적용받기 위한 증명서류_1통

【요약서】**【요약】**

본 발명은 표면 개질된 실리카와 그 제조방법 및 장치에 관한 것으로서, 더욱 상세하게는 반도체 패키지용 에폭시 봉지재의 주성분인 실리카와 에폭시 수지간의 접착력 향상을 위하여 에폭시 수지와 화학적 결합이 가능한 반응기를 함유한 아민계 화합물, 1,2-에폭시-5-헥센, 알릴머캡탄 및 알릴알콜 중에서 선택된 단량체로 실리카를 플라즈마 중합 코팅방법으로 표면 개질시키고, 이 표면 개질된 실리카를 사용하여 에폭시 봉지재를 제조함으로써, 종래에 비해 환경 친화적이며, 에폭시 봉지재의 각종 물성을 우수하게 개선시킨 표면 개질된 실리카와 그 제조방법 및 장치에 관한 것이다.

【대표도】

도 1

【색인어】

에폭시 봉지재, 실리카, 플라즈마 중합 코팅

【명세서】

【발명의 명칭】

표면 개질된 실리카와 그 제조방법 및 장치{Surface modified silica by plasma polymerization, preparation method of thereof and apparatus of thereof}

【도면의 간단한 설명】

도 1은 본 발명에 따른 표면 개질된 에폭시 봉지재용 실리카 제조장치의 일구현예를 개략적으로 나타낸 것이다.

【도면의 주요 부분에 대한 부호의 설명】

- | | |
|---------------------------------------|------------------------|
| 1: 원통형 반응기(Tubular reactor) | 2: RF 코일 |
| 3: 교반기(Mixing blade) | 4: 원통형 반응기 제어기 |
| 5: 제 1 기어 | 6: 제 2 기어 |
| 7: 유량조절기(Mass flow controller) | 8: 기체용기(Gas container) |
| 9: 조절밸브(Needle valve) | 10: 단량체 용기(Bubbler) |
| 11: 필터 | |
| 12: 임피던스 조절기(Impedance matching unit) | |
| 13: RF 전원공급장치(RF power supply unit) | |

【발명의 상세한 설명】**【발명의 목적】****【발명이 속하는 기술분야 및 그 분야의 종래기술】**

- <11> 본 발명은 표면 개질된 실리카와 그 제조방법 및 장치에 관한 것으로서, 더욱 상세하게는 반도체 패키지용 에폭시 봉지재의 주성분인 실리카와 에폭시 수지간의 접착력 향상을 위하여 에폭시 수지와 화학적 결합이 가능한 반응기를 함유한 아민계 화합물, 1,2-에폭시-5-헥센, 알릴머캡탄 및 알릴알콜 중에서 선택된 단량체로 실리카를 플라즈마 중합 코팅방법으로 표면 개질시키고, 이 표면 개질된 실리카를 사용하여 에폭시 봉지재를 제조함으로써, 종래에 비해 환경 친화적이며, 에폭시 봉지재의 각종 물성을 우수하게 개선시킨 표면 개질된 실리카와 그 제조방법 및 장치에 관한 것이다.
- <12> 에폭시 봉지재(epoxy molding compound, EMC)는 반도체 소자를 외부의 환경으로부터 보호하는 역할을 하는 재료로써 그 주성분이 실리카(silica)와 에폭시 수지(epoxy resin)로 이루어져 있으며, 에폭시 수지의 우수한 전기 절연성, 기계적 특성 및 화학적, 열적 안정성을 바탕으로 1960 연대말 전자 패키지용 봉지재로 채택된 이래 현재에는 90 % 이상의 반도체 패키지에 적용되고 있다.
- <13> 최근 반도체 소자는 소형화, 고집적화 되어가는 반면에, 에폭시 봉지재는 단소, 박형화됨에 따라 그 신뢰성 향상이 요구되고 있다. 즉, 에폭시 봉지재에 의해 봉지된 반도체 소자가 회로 기판에 부착 될시 약 200 ℃이상의 고온에 노출되면서 에폭시 봉지재에 크랙이 생기거나 에폭시 봉지재와 리드 프레임과의 박리현상이 발생하여 내습성이 저하되는 등 여러 가지 문제점이 야기됨으로 에폭시 봉지재의 신뢰성이 요구된다.

- <14> 에폭시 봉지재의 신뢰성 향상을 위해서는 우수한 기계적 특성, 낮은 열팽창 계수 및 흡습율 등의 물성이 요구되는바, 에폭시 봉지재의 신뢰성을 향상시키기 위한 기술로서 에폭시 봉지재의 내부 응력을 낮추는 기술과 에폭시 봉지재의 물성을 향상시키는 방법이 사용되어왔다. 이 중 에폭시 봉지재의 물성을 향상시키는 방법으로는 실레인 커플링제를 사용하여 표면 개질한 실리카를 이용하여 실리카와 에폭시 수지간의 접착력을 향상시키는 방법이 사용되고 있다. 그러나 실레인 커플링제 코팅 방법은 기술적 측면에 따라 여러 가지 단점들을 가지고 있다.
- <15> 실레인 커플링제를 사용한 실리카의 표면 개질 기술을 살펴보면, 코팅/건조/분말화된 실리카를 사용하는 방법(Pretreatment method; PM), 코팅만된 실리카를 사용하는 방법(Internal pretreatment method; IPM) 그리고 실레인/실리카를 동시에 첨가하는 방법(Integral addition method; IAM) 등이 있다. 그러나, PM을 이용하면 표면 개질된 실리카와 에폭시 수지간의 우수한 접착력을 얻을 수 있으나, 표면처리 후 용매(알콜과 물)제거와 실리카의 응집 현상을 막기 위하여 건조와 분말화 과정이 요구되어지는 등 가공공정이 길고 복잡하여 실제로 에폭시 봉지재 제조를 위한 산업체에 응용하기에는 비경제적이다. IPM은 PM의 건조 과정과 분말화 과정을 배제한 방법으로 전체적인 가공 시간은 단축되었으나 용매를 사용하는 단점과 이로 인한 실리카의 응집 및 보관시 변질되는 현상을 초래하고, 이는 에폭시 봉지재의 물성 저하 원인이 된다. IAM은 실리카 표면 전처리 과정이 배제되어 용매 사용이 없고 에폭시 봉지재 제조 공정이 한 단계로 이루어지는 장점이 있으나, 실리카와 에폭시 수지간의 접착력 향상이 낮은 단점을 갖고 있다.
- <16> 이와 같이 실레인 커플링제를 사용하여 실리카의 표면을 개질 하는 방법은 용매를

사용하므로 환경 오염을 유발할 수 있고, 그 처리 시간이 길고 복잡하며, 처리 후 실레인 커플링제의 가수분해와 축합 반응의 결과로 실리카가 변질되거나 응집되는 현상이 발생되어 이로 인한 에폭시 봉지재의 물성 저하를 초래하는 문제점들을 가지고 있다.

특히 최근 환경에 대한 관심이 높아지고 환경오염의 규제법 등이 제정되고 있는 현실을 감안하면, 실레인 커플링제에 의한 실리카의 표면 처리 방법을 대체할 수 있는 환경친화적인 방법이 요구된다.

- <17> 이러한 환경친화적인 연구의 일환으로 플라즈마 중합 코팅 기술에 대한 개발이 활발히 진행 중이다. 야수다(Plasma Polymerization, Academic Press, New York, 1985)에 의하면 플라즈마 중합 박막은 다양한 기질에 대한 우수한 접착력을 보이고 가교 결합된 구조로 인하여 산소와 물에 대한 낮은 투과도와 내화학성이 뛰어난 것으로 보고되었다. 싸이(Tsai)와 반 오이(van Ooij) 등은 이러한 플라즈마 중합 코팅 기술을 이용하여 철을 아세틸렌 플라즈마 중합으로 코팅시킨 결과, 플라즈마 중합 박막내에 존재하는 탄소간의 이중결합으로 인하여 고무와 접착력이 향상되었음을 보고한 바 있다 (Surface and Interface Analysis, Vol. 23, pp. 261-275, 1995).

【발명이 이루고자 하는 기술적 과제】

- <18> 이와 같이 종래의 실레인 커플링제에 의한 실리카의 표면 개질을 통한 에폭시 봉지재의 물성 향상 방법은 용매를 사용하므로 환경오염을 유발시킬 수 있고, 그 처리시간이 길고, 처리 후 실레인 커플링제의 가수분해와 축합반응의 결과로 실리카가 변질되거나 응집되는 현상이 발생되어 이로 인한 에폭시 봉지재의 물성저하를 초래하는 문제를 가지고 있는 바, 에폭시 봉지재의 신뢰성 향상을 위하여 각종 물성을 향상시키면서 환경친화

적이며 경제적인 에폭시 봉지재의 개발이 절실히 요구되고 있는 실정이다.

<19> 본 발명자는 타이어 철심을 아세틸렌으로 플라즈마 중합 코팅시켜 고무와의 우수한 접착력을 유도한 바 있다(H. M. Kang, K. H. Chung, S. Kaang and T. H. Yoon, Elastomer (Korea), Vol. 35, No. 1, pp. 53-62, 2000).

<20> 상기와 같은 플라즈마 중합 코팅(plasma polymerization coating) 기술이 기질과의 접착력을 향상시키는 점을 에폭시 봉지재에 적용하여 본 발명을 완성하였다.

<21> 따라서, 본 발명의 목적은 상기 문제를 개선하기 위하여 에폭시 봉지재의 주성분인 실리카와 에폭시 수지간의 접착력 향상을 위하여 에폭시 수지와 화학적 결합이 가능한 반응기를 함유한 아민계 화합물, 1,2-에폭시-5-헥센, 알릴머캡탄 및 알릴알콜 중에서 선택된 단량체로 실리카를 플라즈마 중합 코팅하여 표면 개질된 실리카를 제공하는데 있다.

<22> 또한, 본 발명의 다른 목적은 상기한 표면 개질된 실리카를 이용하여 환경친화적이며, 제반 물성이 우수하게 개선된 반도체 패키지용 에폭시 봉지재를 제공하는데 있다.

【발명의 구성 및 작용】

<23> 본 발명은 반도체 패키지에 사용되는 에폭시 봉지재용 실리카에 있어서, 상기 실리카의 표면이 아민계 화합물, 1,2-에폭시-5-헥센(1,2-epoxy-5-hexene), 알릴머캡탄(allylmercaptan) 및 알릴알콜(allyl alcohol) 중에서 선택된 것으로 플라즈마 중합 코팅되어 표면 개질된 에폭시 봉지재용 실리카를 그 특징으로 한다.

<24> 상기 아민계 화합물로는 1,3-다이아미노프로판(1,3-diaminopropane), 알릴아민

(allylamine), 피롤(pyrrole) 등을 사용할 수 있다.

<25> 본 발명은 실리카를 플라즈마 중합으로 코팅시키는 방법에 있어서, 평균 직경 25 ~ 35 μm 인 실리카를 플라즈마 중합 반응기(1) 안에 주입한 후에 진공 펌프로 반응기 내의 공기압력을 1×10^{-3} torr까지 떨어뜨리는 1 단계;와 상기 압력이 떨어진 플라즈마 중합 반응기에 아민계 화합물, 1,2-에폭시-5-헥센(1,2-epoxy-5-hexene), 알릴머캡탄(allylmercaptan) 또는 알릴알콜(allylalcohol)을 철로 만든 관의 구멍을 통하여 반응기 안으로 유입시키는 2 단계; 및 플라즈마 전력 10 ~ 40 W, 기체 압력 40 ~ 50 mtorr, 처리시간 20 ~ 40초로 플라즈마 중합 조건을 설정하고 반응기를 1 ~ 50 rpm 으로 회전시키는 3 단계;로 이루어지는 표면 개질된 에폭시 봉지재용 실리카의 제조방법을 포함한다.

<26> 상기 3 단계의 플라즈마 중합 조건은 사용한 아민계 화합물, 1,2-에폭시-5-헥센(1,2-epoxy-5-hexene), 알릴머캡탄(allylmercaptan) 또는 알릴알콜(allylalcohol)의 화학적 구조 및 성질이 다르기 때문에 각각에 대하여 최적 조건(optimum condition)이 달라질 수 있다.

<27> 또한, 본 발명은 실리카 제조장치에 있어서, 회전가능한 원통형 몸체의 외부면에 RF 코일(2)이 감겨져 있는 원통형 반응기(1);와 그 반응기 내부에서 설치되고 원통형 몸체와 동심축으로 하여 반대방향으로 회전하는 양날개를 가지는 교반기(3);와 원통형 반응기 제어기(4)에 의해 작동제어되는 원형반응기에 부설된 제 1 기어(5)와 상기 교반기

에 부설된 제 2 기어(6)로 이루어지는 구동수단; 그리고 유량조절기(7)가 부설된 기체용기(8)와 조절밸브(9)가 부설된 단량체 용기(10)를 포함하는 반응물 공급수단;을 포함하는 표면 개질된 에폭시 봉지재용 실리카의 제조장치를 포함한다.

<28> 여기서, 상기 반응기(1)의 일측에는 진공펌프에 의한 실리카 분말이 진공펌프로 들어가는것을 방지하기 위하여 역할을 하는 필터(11)가 설치되어있다. 또한, 최적의 플라즈마를 생성하기 위한 임피던스 조절기(12)와 RF 코일의 전원을 조절하는 RF 전원장치(13)가 표면 개질된 에폭시 봉지재용 실리카의 제조장치에 포함된다.

<29> 상기 원통형 반응기(1)는 파이렉스(Pyrex; 내경 100 mm, 길이 360 mm, 두께 10 mm)로 제 1 기어(5)를 사용하여 회전이 가능하도록 되어있으며, 실리카의 균일한 코팅을 위하여 반응기와 반대 방향으로 회전이 가능한 양날을 가진 교반기(3)를 반응기 내부에 장착하고 있다.

<30> 그리고, 본 발명은 에폭시 수지, 경화제, 경화촉진제 및 실리카를 포함하는 성분으로 구성된 에폭시 봉지재에 있어서, 실리카는 상기 표면 개질된 에폭시 봉지재용 실리카를 사용하는 반도체 패키징용 에폭시 봉지재를 포함한다.

<31> 반도체 패키징용 에폭시 봉지재를 제조할 때 표면 개질된 에폭시 봉지재용 실리카를 사용하면 실리카와 에폭시와의 접착력을 향상시켜 에폭시 봉지재의 각종 물성을 우수하게 개선시킨다.

<32> 상기 반도체 패키징용 에폭시 봉지재를 제조하는 방법을 간단히 살펴보면 에폭시 수지, 경화제, 경화촉진제를 150 °C에서 3 분간 혼합한 다음 상기 방법에 의해 플라즈마

중합 코팅하여 표면 개질된 실리카를 넣어주고 다시 5 분간 균일하게 혼합시킨 후, 실리콘 고무 몰드에 부어 진공 오븐에 넣고 130 ℃에서 3 분간 기포를 제거한 후 175 ℃에서 4 시간 경화시켜 에폭시 봉지재를 제조할 수 있다.

<33> 상술한 바와 같이, 본 발명에 따른 표면 개질된 에폭시 봉지재용 실리카는 실리카를 플라즈마 중합 코팅하여 표면 개질시켜 반도체 패키징용 에폭시 봉지재에 사용하여 에폭시와의 접착력을 향상시킴으로써 에폭시 봉지재의 각종 물성을 우수하게 개선시키므로 반도체 패키징용으로 유용하게 사용할 수 있다.

<34> 이와 같은 본 발명을 실시예에 의거하여 상세하게 설명하겠는 바, 본 발명이 실시예에 한정되는 것은 아니다.

<35> 실시예 1 ~ 6. 실리카의 표면 개질

<36> 본 발명에 따른 표면 개질된 실리카를 제조하기 위한 최적조건을 찾기위해 다음과 같은 방법으로 실리카 표면 개질을 하였고, 각 화합물의 최적조건을 표 1에 나타내었다.

<37> 먼저, 용융구형 실리카 30 g을 원통형 반응기에 넣고 진공 펌프로 반응기 내의 공기압력을 1×10^{-3} torr까지 떨어뜨린 후에 원통형 반응기 내부의 교반기를 50 rpm으로 회전시키면서 단량체 1,3-다이아미노프로판(실시예 1)을 유량조절기를 사용하여 반응기 안으로 유입시켜 반응기 내부의 압력이 40 mtorr이 되도록 하였다. 그 다음 반응 시간을 30초로 고정시킨 후 플라즈마 전력을 20, 30, 40, 50 W의 각 조건에 대해 실시한 후, 제조된 실리카를 이용하여 에폭시 봉지재(EMC)를 제조하여 에폭시 봉지재의 굴곡강도를 측정하였다. 40 W에서 굴곡강도가 가장 최고값을 보였기 때문에 40 W를 1,3-다이아

미노프로판의 최적 플라즈마 전력조건으로 하였다. 다음으로 기체의 압력 조건을 최적화 하기 위하여 플라즈마 전력을 40 W, 처리 시간을 30 초로 고정시키고 기체의 압력을 30, 40, 50 mtorr로 변화시켜 플라즈마 중합 코팅을 실시한 후, 제조된 실리카를 이용하여 에폭시 봉지재(EMC)를 제조하여 에폭시 봉지재의 굴곡강도를 측정하였다. 40 mtorr에서 굴곡강도가 가장 최고값을 보였기 때문에 40 mtorr를 1,3-다이아미노프로판의 최적 플라즈마 압력으로 하였다. 마지막으로 처리 시간을 최적화 하기 위하여 플라즈마 전력을 40 W, 기체 압력을 40 mtorr로 고정시키고 처리 시간을 30, 60, 90 초로 변화시켜 플라즈마 중합을 실시한 후, 코팅된 실리카를 이용하여 에폭시 봉지재(EMC)를 제조하여 에폭시 봉지재의 굴곡강도를 측정하였다. 처리 시간이 증가할수록 굴곡강도는 낮아지는 경향을 보였으므로 30 초가 최적 조건으로 결정되었다. 따라서 1,3-다이아미노프로판의 플라즈마 중합 코팅 최적 조건은 40 W, 40 mtorr, 30 초로 결정하였다.

<38> 사용된 단량체(monomer)들은 화학적 구조 및 성질이 다르기 때문에 각각에 대하여 고유의 플라즈마 중합 조건을 최적화 할 필요가 있었다. 따라서 1,3-다이아미노프로판의 플라즈마 중합 조건의 최적화 과정과 같이 알릴아민(실시예 2), 피롤(실시예 3), 1,2-에폭시-5-헥센(실시예 4), 알릴머캡탄(실시예 5) 이나 알릴알콜(실시예 6) 등에 대해서도 플라즈마 중합 조건을 최적화하였다.

<39> 상기 플라즈마 중합의 최적조건에 따라 실리카를 표면 개질 시켰다(실시예 1 ~ 6).

<40>

【표 1】

구 분		실시에					
		1	2	3	4	5	6
반응조건	플라즈마 전력(W)	40	30	30	10	30	30
	기체 압력(mtor)	40	40	50	40	40	40
	처리시간(초)	30	30	30	30	30	30

<41> 실시에 7 ~ 8.

<42> 플라즈마 중합 코팅의 안정성을 조사하기 위하여 실시에 1과 2에 의해 제조한 표면 개질된 실리카를 상온과 상압 하에서 1, 3, 7, 15 일 동안 노화(aging)시켰다. 노화방법은 플라즈마 중합 코팅된 30 g의 실리카를 1000 ml 비이커에 넣은 후 윗 부분을 킴와이프 종이로 덮고 구리철사로 고정시킨 후에 실험실에 방치하는 방법을 사용하였다.

<43> 실시에 9 ~ 16 및 비교예 1. 에폭시 봉지재의 제조

<44> 다음 표 2에 나타난 에폭시 수지, 경화제, 경화촉진제를 150 ℃에서 3 분간 혼합한 다음 상기 실시에 1 ~ 8 및 표면 개질되지 않은 실리카를 넣고 다시 5 분간 균일하게 혼합시킨 후, 실리콘 고무 몰드에 부었다. 굴곡강도(flexural strength) 측정시 기포로 인한 오차를 제거하기 위하여 진공 오븐에 몰드를 넣고 130 ℃에서 3 분간 기포를 제거한 후 175 ℃에서 4 시간 경화시켜 에폭시 봉지재를 제조하였다.

<45> 【표 2】

구 분			실 시 예								비 교 예
			9	10	11	12	13	14	15	16	1
조성성분 A g V	실 리 카	실 시 예 1	24								
		실 시 예 2		24							
		실 시 예 3			24						
		실 시 예 4				24					
		실 시 예 5					24				
		실 시 예 6						24			
		실 시 예 7							24		
		실 시 예 8								24	
		실 리 카									24
	에폭시 수지 1)		10.19	10.19	10.19	10.19	10.19	10.19	10.19	10.19	10.19
	경화제 2)		5.78	5.78	5.78	5.78	5.78	5.78	5.78	5.78	5.78
	경화촉진제 3)		0.03	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03

1) 바이페닐계 에폭시(biphenyl type epoxy)
2) 페놀 노보락(phenol novolac)
3) 트리페닐포스핀(triphenylphosphine)

<46> 실험예 1 ~ 7.

<47> 상기 실시예 9 ~ 14와 비교예 1에 의해 제조된 에폭시 봉지재의 물성을 다음과 같은 방법에 의해 측정하였고, 그 결과를 표 3에 나타내었다.

<48> <시험방법>

<49> 1. 굴곡강도(MPa): ASTM D 790에 의해 3 포인트 벤드 시험법으로 상온과 250 ℃에서 3×

10×60 mm 크기의 시편을 사용하여 측정하였다.

<50> 2. 열팽창계수(CTE, $\mu\text{m}/\text{m}^\circ\text{C}$): TMA에 의하여 T_g 이하의 유리 상(glassy state)과 T_g 이상의 고무 상(rubbery state)에서 측정하였다.

<51> 3. 수분 흡습율(wt.%): 121 $^\circ\text{C}$, 100 % 상대습도, 2기압의 프레스 쿠키(cooker) 안에서 각 3개의 3×10×60 mm 크기의 시편을 사용하여 8, 16, 24, 및 32 시간 동안 실시하였다.

<52> 【표 3】

구 분	시료	상온 굴곡강도 (MPa)	250 $^\circ\text{C}$ 굴곡강도 (MPa)	CTE ($\mu\text{m}/\text{m}^\circ\text{C}$)		수분 흡습율(wt.%)			
				유리상 영역	고무상 영역	8시간	16시간	24시간	32시간
실험예 1	실시예 9	167±3	7.5±0.5	42	128	0.50	0.66	0.70	0.70
실험예 2	실시예 10	165±4	7.2±0.8	39	128	0.49	0.64	0.71	0.71
실험예 3	실시예 11	157±3	5.6±0.7	33	133	0.55	0.72	0.78	0.75
실험예 4	실시예 12	154±3	5.7±0.9	37	135	0.49	0.69	0.77	0.76
실험예 5	실시예 13	152±5	6.0±0.3	38	143	0.58	0.75	0.74	0.76
실험예 6	실시예 14	148±5	5.5±0.4	33	140	0.56	0.68	0.76	0.76
실험예 7	비교예 1	140±5	5.6±0.7	35	145	0.54	0.70	0.81	0.81

<53> 상기 표 3에 나타난 바와 같이, 본 발명에 따른 실시예 9 ~ 14는 대조 표준 물질(control sample)인 비교예 1과 비교해볼 때, 에폭시 봉지재의 굴곡강도가 증가하였음을 확인할 수 있었다. 그리고, 본 발명에 따른 실시예 9 ~ 14의 열팽창계수와 수분 흡

습을 또한 비교예 1 보다 우수함을 확인할 수 있었다.

<54> 실험예 8 ~ 9: 노화시간에 따른 에폭시 봉지재의 굴곡강도 측정

<55> 플라즈마 중합 코팅의 시간에 따른 안정성을 조사하기 위하여 노화 시간(aging time)에 따라 제조한 실시예 15와 실시예 16의 에폭시 봉지재를 상기 실험예 1과 같은 방법으로 상온에서 굴곡강도를 측정하였고, 그 결과를 표 4에 나타내었다.

<56> 【표 4】

구 분	시료	상온 굴곡강도 (MPa)				
		노화시간 (일)				
		0	1	3	7	15
실험예 8	실시예 15	167 ± 3	167 ± 4	167 ± 5	165 ± 4	165 ± 2
실험예 9	실시예 16	165 ± 4	163 ± 4	164 ± 5	165 ± 4	165 ± 2

<57> 상기 표 4에 나타난 바와 같이, 본 발명에 따른 실시예 15 ~ 16은 노화시간에 따라 굴곡강도의 변화가 적어 플라즈마 중합 코팅의 시간에 따라 안정함을 확인할 수 있었다.

<58> 이상에 나타난 바와 같이, 본 발명에 따른 표면 개질된 실리카를 에폭시 봉지재에 사용함에 따라 실리카와 에폭시 수지간의 접착력을 향상시켜 에폭시 봉지재의 물성을 우수하게 함을 알 수 있었다.

【발명의 효과】

<59> 상술한 바와 같이, 본 발명에 따른 에폭시 봉지재는 주성분인 실리카를 플라즈마 중합 장치를 이용하여 아민계 화합물, 1,2-에폭시-5-헥센, 알릴머캡탄 및 알릴알콜 중에서 선택된 것으로 플라즈마 중합 코팅하여 표면 개질시켜 사용함으로써, 에폭시 봉지재 내의 실리카와 에폭시 수지간의 접착력이 향상되어 에폭시 봉지재가 종래에 비해 환경친화적이고 경제적이며 각종 제반 물성이 우수하게 개선되어 반도체 패키지로 유용하게 사용할 수 있다.

【특허청구범위】**【청구항 1】**

반도체 패키지에 사용되는 에폭시 봉지재용 실리카에 있어서, 상기 실리카의 표면이 아민계 화합물, 1,2-에폭시-5-헥센(1,2-epoxy-5-hexene), 알릴머캡탄(allylmercaptan) 및 알릴알콜(allylalcohol) 중에서 선택된 것으로 플라즈마 중합법으로 코팅되어 있는 것을 특징으로 하는 표면 개질된 에폭시 봉지재용 실리카.

【청구항 2】

제 1 항에 있어서, 상기 아민계 화합물은 1,3-다리아미노프로판, 알릴아민 및 피롤 중에서 선택된 것임을 특징으로 하는 에폭시 봉지재용 실리카.

【청구항 3】

실리카를 플라즈마 중합으로 코팅시키는 방법에 있어서,

- 1) 평균 직경 25 ~ 35 μm 인 실리카를 플라즈마 중합 반응기(1)안에 주입한 후에 진공 펌프로 반응기 내의 공기압력을 1×10^{-3} torr까지 떨어뜨리는 단계;와
- 2) 상기 압력이 떨어진 플라즈마 중합 반응기에 아민계 화합물, 1,2-에폭시-5-헥센(1,2-epoxy-5-hexene), 알릴머캡탄(allylmercaptan) 및 알릴알콜(allylalcohol) 중에서 선택된 것을 철로 만든 관의 구멍을 통하여 반응기 안으로 유입시키는 단계;
- 3) 플라즈마 전력 10 ~ 40 W, 기체 압력 40 ~ 50 mtorr, 처리시간 20 ~ 40초로 플라즈마 중합 조건을 설정하고 반응기를 1 ~ 50 rpm 으로 회전시키는 단계;로 이루어

지는 것을 특징으로 하는 표면 개질된 에폭시 봉지재용 실리카의 제조방법.

【청구항 4】

실리카 제조장치에 있어서,

회전가능한 원통형 몸체의 외부면에 RF 코일(2)이 감겨져 있는 원통형 반응기(1);
와

그 반응기 내부에서 설치되고 원통형 몸체와 동심축으로 하여 반대방향으로 회전하는 양날개를 가지는 교반기(3);와

원통형 반응기 제어기(4)에 의해 작동제어되는 원형반응기에 부설된 제 1 기어(5)
와 상기 교반기에 부설된 제 2 기어(6)로 이루어지는 구동수단; 그리고

유량조절기(7)가 부설된 기체용기(8)와 조절밸브(9)가 부설된 단량체 용기(10)를
포함하는 반응물 공급수단;

을 포함하는 것을 특징으로 하는 표면 개질된 에폭시 봉지재용 실리카의 제조장치.

【청구항 5】

에폭시 수지, 경화제, 경화촉진제 및 실리카를 포함하는 성분으로 구성된 에폭시 봉지재에 있어서, 상기 실리카는 제 1 항에 기재된 에폭시 봉지재용 실리카를 사용하는 것을 특징으로 하는 반도체 패키지용 에폭시 봉지재.

【도면】

【도 1】

